

ISSN : 2085 - 0492

Seminar Material Metalurgi 2008

*Penguatan Riset Material Metalurgi
Menuju Kemandirian Teknologi*



Sponsor :



Diterbitkan Oleh :
PUSAT PENELITIAN METALURGI
LEMBAGA ILMU PENGETAHUAN INDONESIA
Kawasan PUSPIPTEK Serpong-Tangerang 15314
Telp : 7560911, 7560562 Ps. 3201
Fax : 7560553

antam

PERILAKU OKSIDASI PADUAN GELAS METALIK Zr-Cu-Ni-Al PADA 440-480°C DI UDARA

Triwikantoro dan Fatimatul Munawaroh

Laboratorium Fisika Material

Jurusan Fisika, FMIPA, Institut Teknologi Sepuluh Nopember, Surabaya

Kampus ITS Sukolilo, Surabaya 60111

e-mail : triwi@physics.its.ac.id, fatim_physics@yahoo.co.id

Intisari

Gelas metalik merupakan material paduan yang berpotensi untuk berbagai aplikasi industri di masa yang akan datang. Tetapi, pada temperatur tinggi seringkali penggunaan sifat-sifat gelas metalik yang unggul mengalami degradasi, salah satunya oksidasi. Tujuan penelitian ini adalah untuk mengetahui perilaku oksidasi paduan gelas metalik $Zr_{53.1}Cu_{23}Ni_{18}Al_{5.9}$, $Zr_{65}Cu_{17.5}Ni_{10}Al_{7.5}$ dan $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ pada temperatur 440, 460, dan 480°C di udara. Paduan gelas metalik ini diperoleh dengan melelehkan unsur-unsur Zr, Cu, Ni dan Al dengan kemurnian tinggi yaitu 99,9%, dari lelehan ini paduan dibuat menggunakan metode melt spinning (lelehan berputar), berbentuk pita dengan tebal 20-40 μm dan lebar 1,5-2,5 mm. Ketiga sampel dipotong dengan panjang 8 cm, kemudian salah satu permukaannya dipoles menggunakan kertas SiC grid 2000 mesh dan dibersihkan dengan alkohol 70%. Analisis kinetika oksidasi ketiga paduan dilakukan dengan menggunakan analisis thermogravimetri (TGA) pada suhu 440°C selama 2 jam di udara. Sedangkan analisis produk oksida yang terbentuk menggunakan difraksi sinar-X (XRD) setelah sampel dipanaskan selama 1 jam. Berdasarkan data kinetika oksidasi, laju oksidasi ketiga paduan pada suhu 440°C mengikuti hukum parabolik dan yang mempunyai ketahanan oksidasi lebih tinggi dibandingkan dua paduan yang lainnya adalah paduan $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$. Hal ini didukung dengan data difraksi sinar-X yang menunjukkan produk oksidasi yang terbentuk lebih sedikit pada paduan $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ dibandingkan dua paduan yang lain. Produk oksidasi yang utama adalah ZrO_2 (t), selain itu juga terdapat CuO . Sedangkan dengan peningkatan suhu, laju oksidasi paduan semakin meningkat. Dari hasil penelitian ini diharapkan penggunaan paduan gelas metalik $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ ini lebih luas dan bervariasi.

Kata kunci : gelas metalik, Zr-Cu-Ni-Al, oksidasi, kinetika

Abstract

Metallic glasses are alloy materials which high potential for the future manifold application in industry. However, at high temperatures the excellent properties of metallic glasses will be degraded, one of them is oxidation. The aims of this research is to understanding oxidation behavior bulk metallic glasses $Zr_{53.1}Cu_{23}Ni_{18}Al_{5.9}$, $Zr_{65}Cu_{17.5}Ni_{10}Al_{7.5}$ dan $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ in air. This alloy metallic glasses were prepared by arc melting Zr, Cu, Ni and Al with high purity element (>99.9%). From these alloys amorphous ribbons about 20-40 μm thick and 1.5-2.5 mm wide were fabricated using melt spinning. The $Zr_{53.1}Cu_{23}Ni_{18}Al_{5.9}$, $Zr_{65}Cu_{17.5}Ni_{10}Al_{7.5}$ dan $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ prepared with length 8 cm, then that alloys was ground with #2000 emery paper, and cleaned in alcohol 70%. Analysis of oxidation kinetics using thermogravimetric analyzer (TGA) at 440°C for 2 hour in air. Whereas analysis of oxide products were formed using X-ray diffraction (XRD) after sample heated for 1 hour in air. Based on oxidation kinetics data, oxidation rate all of alloys at 440°C follows parabolic law and the $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ alloys have higher oxidation resistant than two another alloys. With oxide products consisted mainly of ZrO_2 (t), and while CuO also detected. Whereas with increasing temperature, oxidation rate increasingly. From result of this research hope fully application of the $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ metallic glasses wider and more variation.

Keywords : metallic glasses, Zr-Cu-Ni-Al, oxidation, kinetic

1. Pendahuluan

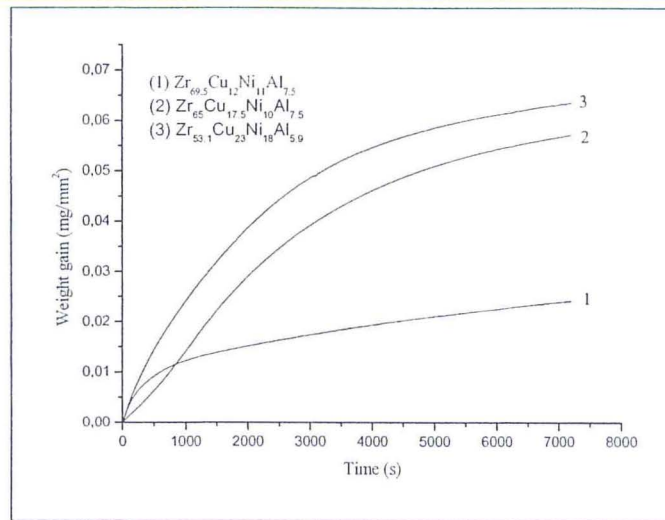
Pada beberapa sepuluh tahun terakhir ini, banyak usaha-usaha yang dicurahkan oleh ilmuwan untuk mengembangkan dan meneliti paduan gelas metalik berbasis Zirkonium karena sifat-sifat mekanik yang unggul, seperti kekuatan yang tinggi dan batas elastisitas yang besar, sifat-sifat fisika dan kimia, seperti ketahanan korosi dan pakai, yang sungguh berbeda dari bahan-bahan kristalin yang lain [1,2]. Secara umum ketika padatan tidak mempunyai susunan atomik yang sistematis, yaitu keadaan amorf, kekuatan dan ketahanan korosinya meningkat [1]. Gelas metalik atau gelas logam mempunyai banyak aplikasi di bidang industri meliputi industri pelapisan untuk meningkatkan ketahanan pakai dan korosi, *casing* telepon genggam, pisau bedah, alat-alat olahraga seperti pemukul golf dan raket, dan intan permata [3,4]. Tetapi pada suhu tinggi sifat-sifat unggul dari gelas metalik berbasis Zirkonium akan mengalami degradasi, salah satunya adalah oksidasi. Ketahanan oksidasi paduan gelas metalik berbasis Zirkonium telah banyak diteliti diantaranya : oksidasi gelas metalik $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ di udara pada temperatur antara $330^{\circ}C$ dan $370^{\circ}C$ [5], oksidasi suhu rendah paduan amorf dan nanokristalin Zr-Cu-Ni-Al pada $360^{\circ}C$ [6], perilaku oksidasi paduan amorf Zr-Cu-Al-Ni di udara pada temperatur $325-425^{\circ}C$ [7], perilaku oksidasi paduan gelas metalik $Zr_{53}Ni_{23.5}Al_{23.5}$ di udara pada $400-600^{\circ}C$ [8], dengan produk oksida yang terbentuk terdiri dari ZrO_2 (tetragonal) sebagai fase utama, dan oksidasi paduan gelas metalik $Zr_{65}Al_{10}Ni_{10}Cu_{15}$ di udara antara $250-400^{\circ}C$ [9]. Dari beberapa studi yang dilakukan, penelitian perilaku oksidasi paduan gelas metalik multikomponen berbasis Zirkonium diatas temperatur kristalisasi masih jarang dilakukan. Sehingga, tujuan dari penelitian ini adalah untuk mengetahui perilaku oksidasi paduan gelas metalik $Zr_{53.1}Cu_{23}Ni_{18}Al_{5.9}$, $Zr_{65}Cu_{17.5}Ni_{10}Al_{7.5}$ dan $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ pada temperatur antara $440-480^{\circ}C$.

2. Prosedur Kerja

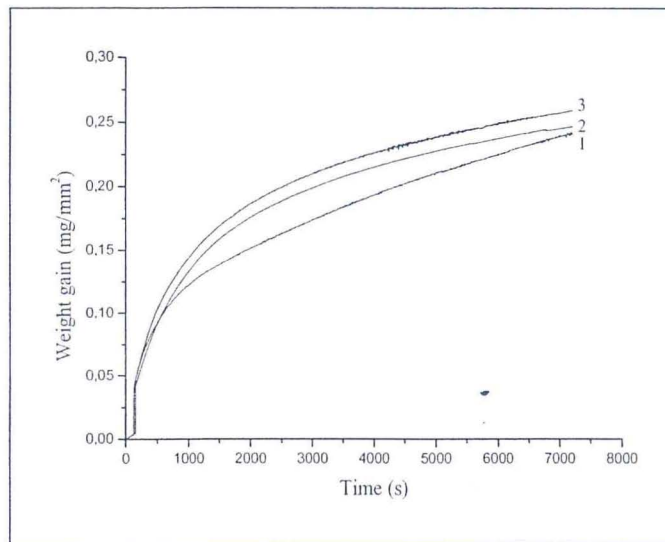
Paduan $Zr_{53.1}Cu_{23}Ni_{18}Al_{5.9}$, $Zr_{65}Cu_{17.5}Ni_{10}Al_{7.5}$ and $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ diperoleh dengan melelehkan unsur-unsur Zr, Cu, Ni and Al dengan kemurnian tinggi yaitu $>99.9\%$. Dari lelehan tersebut paduan amorf berbentuk pita dengan tebal antara $20-40\ \mu m$ dan lebar $1.5-2.5\ mm$ dibuat dengan menggunakan *melt spinning* (lelehan berputar). Ketiga sampel dipotong dengan panjang $8\ cm$ dan dipoles menggunakan kertas SiC grid 2000 mesh, kemudian dibersihkan dengan alkohol 70% serta dikeringkan diudara bebas. Selanjutnya ketiga paduan dioksidasi isothermal pada temperatur 440 , 460 , and $480^{\circ}C$ di udara selama 2 jam menggunakan analisis termogravimetri (TGA), dan produk oksidasi yang terbentuk di uji dengan difraksi sinar-X (XRD).

3. Hasil dan Pembahasan

Gambar 1 menunjukkan perubahan berat sebagai fungsi waktu paduan gelas metalik $Zr_{53.1}Cu_{23}Ni_{18}Al_{5.9}$, $Zr_{65}Cu_{17.5}Ni_{10}Al_{7.5}$ and $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ pada temperature 440° selama 2 jam di udara. Kinetika oksidasi ketiga paduan mengikuti hukum parabolik. pertambahan massa untuk paduan gelas metalik $Zr_{53.1}Cu_{23}Ni_{18}Al_{5.9}$ adalah yang paling besar dan untuk paduan $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ merupakan yang paling tahan oksidasi. Sedangkan pengaruh temperatur pada kinetika oksidasi paduan gelas metalik $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ ditunjukkan pada Gambar 2, yaitu pada kondisi 440 , 460 , and $480^{\circ}C$ kinetika oksidasinya mengikuti fungsi parabolik. Pertambahan massa paduan $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ meningkat dengan peningkatan temperatur. Nilai laju konstanta oksidasi k_p dari paduan gelas metalik $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ setelah 2 jam oksidasi adalah $0.67(\pm 0.005) \times 10^{-4}\ g^2/m^4s$ pada $440^{\circ}C$, $1.55(\pm 0.003) \times 10^{-5}\ g^2/m^4s$ pada $460^{\circ}C$, dan $1.68(\pm 0.004) \times 10^{-5}\ g^2/m^4s$ pada $480^{\circ}C$. Nilai konstanta laju oksidasi k_p paduan gelas metalik $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ menurun dengan peningkatan temperatur.

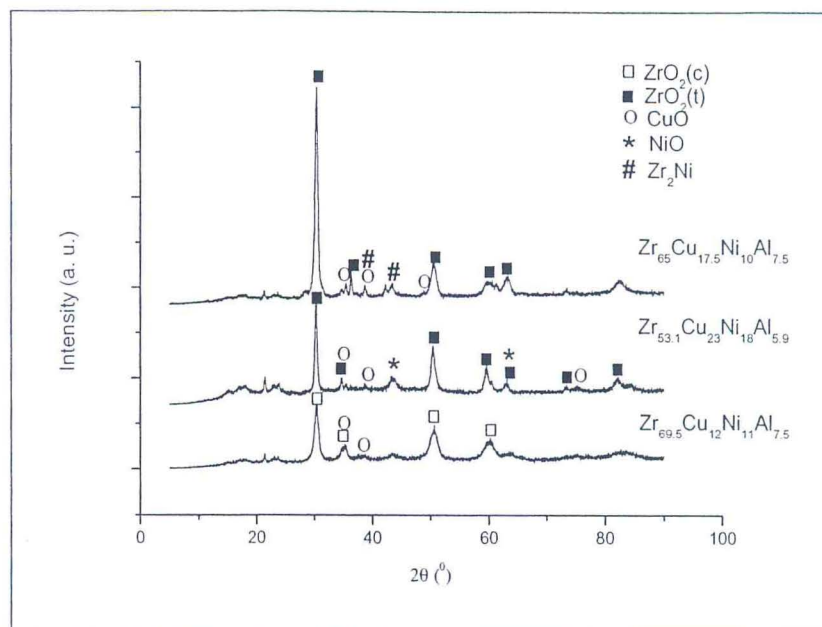


Gambar 1. Kinetika oksidasi paduan gelas metalik $Zr_{53.1}Cu_{23}Ni_{18}Al_{5.9}$, $Zr_{65}Cu_{17.5}Ni_{10}Al_{7.5}$ dan $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ pada $440^{\circ}C$



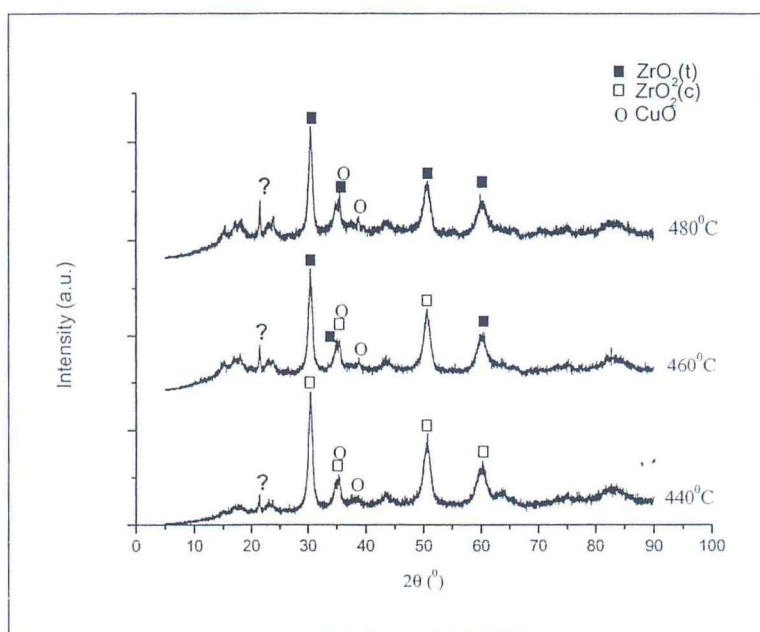
Gambar 2. Kinetika oksidasi paduan gelas metalik $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ pada 440, 460, and $480^{\circ}C$

Gambar 3 menunjukkan hasil pola difraksi sinar-X paduan gelas metalik $Zr_{53.1}Cu_{23}Ni_{18}Al_{5.9}$, $Zr_{65}Cu_{17.5}Ni_{10}Al_{7.5}$ dan $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ pada temperatur $440^{\circ}C$ selama 1 jam oksidasi isothermal di udara. Produk oksida yang terbentuk pada paduan gelas metalik $Zr_{53.1}Cu_{23}Ni_{18}Al_{5.9}$ and $Zr_{65}Cu_{17.5}Ni_{10}Al_{7.5}$ terdiri dari ZrO_2 (tetragonal) yang utama dan sedikit NiO and CuO serta terdapat juga paduan intermetalik Zr_2Ni . Sedangkan pada paduan gelas metalik $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ produk oksida yang utama adalah ZrO_2 (cubic) and CuO dalam jumlah yang sedikit. Hal ini, sama seperti yang telah dilaporkan oleh Kai et. al. [7] dan Kim et. al [9] yaitu produk oksida yang terbentuk pada paduan bulk gelas metalik Zr-Cu-Al-Ni setelah oksidasi pada $T \geq 350^{\circ}C$ terdiri dari ZrO_2 (tetragonal) yang utama. Pembentukan ZrO_2 sebagai produk oksida yang utama karena prosentase Zr pada paduan paling banyak dan Zirkonium mempunyai afinitas kimia yang tinggi dengan oksigen. Sehingga, Zirkonium mudah bereaksi dengan oksigen membentuk zirkonia. Hal ini terjadi secara simultan oksigen masuk ke dalam kristal Zirkonium dan skala oksida terbentuk pada suhu tinggi [7]. Zirkonia, ZrO_2 , merupakan fase yang stabil pada sistem Zr-O, dan terdapat tiga perubahan, ZrO_2 (monoklinik) (dibawah $1000-1200^{\circ}C$), ZrO_2 (tetragonal) (stabil pada temperatur yang lebih tinggi), dan ZrO_2 (cubic) (stabil diatas $1500^{\circ}C$) [7]. Dalam penelitian ini ZrO_2 (tetragonal) dan ZrO_2 (monoklinik) keduanya teramati pada $440^{\circ}C$.



Gambar 3 Pola difraksi sinar-X paduan gelas metalik, $Zr_{53.1}Cu_{23}Ni_{18}Al_{5.9}$, $Zr_{65}Cu_{17.5}Ni_{10}Al_{7.5}$ dan $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ pada $440^{\circ}C$

Pada Gambar 3, fase kristalin Zr_2Ni juga terdeteksi pada paduan gelas metalik $Zr_{65}Cu_{17.5}Ni_{10}Al_{7.5}$, hal ini mengindikasikan bahwa paduan amorf mulai untuk kristalisasi setelah oksidasi pada $440^{\circ}C$ selama 1 jam. Hal ini juga dilaporkan oleh Kai et. al [7], tetapi fase intermetaliknya adalah Zr_2Cu . Sedangkan pembentukan NiO dan CuO sebagai fase minor karena Ni dan Cu mempunyai aktivitas yang lebih rendah dari Zr pada paduan gelas metalik. Dan selama oksidasi, Cu dan Ni berdifusi secara dominan keluar, sedangkan oksigen ke dalam [9]. Dalam penelitian ini tidak terdeteksi oksida Aluminium pada paduan gelas metalik, hal ini kemungkinan jumlah prosentase Aluminium yang paling sedikit diantara unsur yang lain atau aluminium larut dalam oksida yang lain, seperti yang dilakukan oleh Kim et. al. [9]. Puncak-puncak yang terbentuk pada paduan gelas metalik $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ lebih sedikit dibandingkan paduan yang lain, hal ini menunjukkan bahwa paduan tersebut paling tahan terhadap oksidasi sebagaimana kinetika oksidasinya.



Gambar 4 Pola difraksi sinar-X paduan gelas metalik $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ pada $440^{\circ}C$, $460^{\circ}C$, dan $480^{\circ}C$

4. Kesimpulan

Perilaku oksidasi paduan gelas metalik $Zr_{53.1}Cu_{23}Ni_{18}Al_{5.9}$, $Zr_{65}Cu_{17.5}Ni_{10}Al_{7.5}$ dan $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$ pada temperatur 440-480°C di udara telah dikarakterisasi. Kinetika oksidasi ketiga paduan mengikuti hukum parabolik dan laju oksidasi meningkat dengan peningkatan temperatur. Produk oksida yang terbentuk selama oksidasi isothermal terdiri dari ZrO_2 (tetragonal), NiO dan CuO dalam jumlah yang sedikit serta terdapat fasa intermetalik Zr_2Ni pada paduan $Zr_{65}Cu_{17.5}Ni_{10}Al_{7.5}$. Diantara ketiga paduan yang paling tahan terhadap oksidasi adalah paduan gelas metalik $Zr_{69.5}Cu_{12}Ni_{11}Al_{7.5}$.

Daftar Pustaka

- [1] Inoue, A., "Metallic Glass" opens a new field in materials science, Japan Nanonet Bulletin, 2004
- [2] Kim, C.W., Jeong, H.G., Lee, D.B., "Oxidation of $Zr_{65}Al_{10}Ni_{10}Cu_{15}$ Bulk Metallic Glass", *Materials Letters*, vol.62, hal.584-586, 2008
- [3] Reuter, B., Contentdig.com, *What Is Bulk Metallic Glass?*, <http://contentdig.com/profile/brianreuter-666.html>, 2008
- [4] Telford, M., "The Case for Bulk Metallic Glass", *Materials Today*, hal.36-43.2004
- [5] Triwikantoro, Toma, D., Meuris, M., Köster, U., "Oxidation of Zr-based Metallic Glasses in Air", *Journal of non-Crystalline Solids*, vol.252-252, hal.719-723, 1999
- [6] Köster, U., Zander, D., Triwikantoro, Rüdiger, A., Jastrow, L., "Environmental Properties of Zr-Based Metallic Glasses and Nanocrystalline Alloys", *Scripta materialia*, vol.44, hal.1649-1654, 2001
- [7] Kai, W., Hsieh, H.H., Nieh, T.G., Kawamura, Y., "Oxidation Behavior of a Zr-Cu-Al-Ni Amorphous Alloy in Air at 300-425°C", *Intermetallics*, vol.10, hal. 1265-1270, 2002
- [8] Kai, W., Hsieh, H.H., Chen, Y.R., Wang, Y.F., Dong, C., "Oxidation Behavior of An $Zr_{53}Ni_{23.5}Al_{23.5}$ Bulk Metallic Glass at 400-600°C", *Intermetallics*, vol.15, hal.1459-1465, 2007
- [9] Kim, C.W., Jeong, H.G., Lee, D.B., "Oxidation of $Zr_{65}Al_{10}Ni_{10}Cu_{15}$ Bulk Metallic Glass", *Materials Letters*, vol.62, hal.584-586, 2008